

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
15. Mai 2003 (15.05.2003)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 03/041198 A1

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: H01M 8/02, 10/50, C09K 5/10

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP02/12155

(22) Internationales Anmeldedatum:
31. Oktober 2002 (31.10.2002)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
101 54 242.9 7. November 2001 (07.11.2001) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): TICONA GMBH [DE/DE]; Professor-Staudinger-Strasse, 65451 Kelsterbach (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): REUSCHEL, Gerhard [DE/DE]; Platanenweg 20, 65835 Liederbach (DE). REIL, Frank [DE/DE]; Friedrich-Ebert-Strasse 74, 64342 Seeheim (DE). HOERR, Michael [DE/DE]; Weinbergstrasse 67, 69469 Weinheim (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.



WO 03/041198 A1

(54) Title: COOLING DEVICE FOR ELECTRICAL SYSTEMS AND USE OF POLYMERS IN COOLING CIRCUITS

(54) Bezeichnung: KÜHLVORRICHTUNG FÜR ELEKTRISCHE EINRICHTUNGEN UND VERWENDUNG VON POLYMEREN IN KÜHLKREISLÄUFEN

(57) Abstract: The invention relates to the use of polyarylene sulfides or liquid crystal polyesters in cooling devices of electrical systems. The use of polymers reliably maintains the electric conductivity of insulating cooling fluids low in continuous operation. The electrical systems are especially fuel cells.

(57) Zusammenfassung: Beschrieben wird der Einsatz von Polyarylensulfiden oder flüssigkristallinen Polyestern in Kühlvorrichtungen für elektrische Einrichtungen. Mit dem Einsatz dieser Polymeren kann sichergestellt werden, dass die elektrische Leitfähigkeit von isolierenden Kühlfluiden im Dauerbetrieb niedrig bleibt. Als elektrische Einrichtungen sind insbesondere Brennstoffzellen geeignet.

Kühlvorrichtung für elektrische Einrichtungen und Verwendung von Polymeren in Kühlkreisläufen

5

Die vorliegende Erfindung betrifft den Einsatz ausgewählter Polymerer in Kühlkreisläufen, bei denen das Kühlmedium in direktem Kontakt zu elektrisch-spannungsführenden Teilen steht sowie die Verwendung dieser Polymeren in derartigen Kühlkreisläufen.

10

Elektrische Einrichtungen, wie galvanische Elemente zur Gewinnung von elektrischer Energie und Wärme durch eine elektrochemische Reaktion mit kontinuierlicher Zuführung der Reaktanden, werden derzeit intensiv weiterentwickelt. Ziel ist unter anderem der Einsatz als Energiequelle in Kraftfahrzeugen, die 15 Verwendung in dezentralen kombinierten Heizkraftanlagen oder in transportablen Stromgeneratoren.

20

Ungefähr 30% bis 70% der im Brennstoff enthaltenen Energie kann je nach Konstruktion und Betriebspunkt in elektrische Energie umgewandelt werden. Diesem elektrischen Wirkungsgrad stehen dann entsprechend 70% bis 30% thermische Energie gegenüber, die bei der Energieumwandlung freigesetzt wird. Diese thermische Energie muss aus dem System abgeführt werden, um Überhitzungen während des Betriebes zu vermeiden. Gleichzeitig kann diese Energie als Wärmequelle für Heizzwecke genutzt werden. Daher ist für das Funktionieren von 25 solchen elektrochemischen Energiewandlern ein Kühlsystem unverzichtbar, das mit Hilfe von fluiden Wärmeträgern die Verlustwärme der Reaktion abführt und die das System auf konstanter Betriebstemperatur hält. Es ist dabei zu beachten, dass der Wärmeträger ein elektrischer Isolator sein muss, da sonst in Kontakt mit spannungsführenden Teilen Kurzschlüsse oder Leistungsverluste auftreten können.

30

Bei Verwendung in Brennstoffzellensystemen ist zusätzlich darauf zu achten, dass möglichst keine Metallionen in das Kühlmedium übertreten können. Besonders die Elektrolytschicht von Polymer-Elektrolytmembran-(PEM)- Brennstoffzellen reagiert mit Leistungsverlusten auf die Einwirkung von Metallionen.

Zusätzlich sollte das Kühlmedium billig, ungiftig und einfach zu Handhaben sein. Mischungen aus Wasser mit ein- oder mehrwertigen auch polymeren Alkoholen erfüllen diese Anforderungen. So haben sich Mischungen von Wasser mit Glykolen 5 im Einsatz in konventionellen Systemen als Wärmeträger bewährt.

Die Bedeutung der niedrigen Leitfähigkeit des Kühlmediums ist bereits erkannt. Die JP-A-90-92,314 beschreibt eine Brennstoffzelle mit Feststoff-Elektrolyt, bei der die Diffusion von Chrom-Komponenten durch den Einsatz von getrockneter Luft 10 möglichst gering gehalten wird.

Um die Leitfähigkeit des Kühlmediums zu begrenzen und seine Reinheit zu erhalten ist die Verwendung von beschichteten Metallrohren als Wärmetauscherrohre beschrieben worden. In der US-A-3,964,930 wird die Beschichtung der 15 Wärmetauscherrohre mit Fluorpolymeren beschrieben.

In der WO-A-98/40,655 wird der Einsatz von Fluorpolymeren zu äußerer Beschichtung von wärmeleitfähigen Rohren aus Kupfer oder rostfreiem Stahl leitfähigem Material für den Einsatz in Brennstoffzellen beschrieben. Dazu werden 20 zwei Rohre aus diesen Materialien ineinandergeführt und das äußere Rohr wird durch Schrumpfen auf die Oberfläche des inneren Rohres aufgebracht.

Auch der Einsatz von Ionentauschern oder Ionenfiltern im Kühlkreislauf ist bereits beschrieben. Diese Zusatzgeräte sollen die Leitfähigkeit des Kühlmediums gering 25 halten und dessen Ionenfracht vermindern helfen.

Derartige Systeme sind beispielsweise in der JP-A-2000-208,157; der JP-A-80/83,991 und der WO-A-1998-2247856 beschrieben.

30 Weitere Schriften, wie JP-A-2000-113,900 oder EP-A-1,056,148 offenbaren ein Kühlsystem, ohne auf die Materialauswahl der Komponenten einzugehen.

Die bekannten Materialien oder Materialkombinationen sind entweder teuer und/oder

aufwendig zu verarbeiten oder man muss Zusatzgeräte, wie Ionentauscher, einsetzen. Diese Maßnahmen wiederum führen zu erhöhten Kosten, da die Filterpatronen der Ionentauscher im Dauerbetrieb sich erschöpfen und ausgewechselt werden müssen.

5

Es besteht demnach weiterhin ein Bedarf nach leistungsfähigen und preiswerten Kühlsystemen, die sicherstellen, dass keine Erhöhung der Leitfähigkeit des Kühlmediums erfolgt.

10 Es bestand daher die Aufgabe, Kühlsysteme für elektrische Anlagen zu entwickeln, welche die Leitfähigkeit der Kühlflüssigkeit während des Betriebs nicht oder nur unwesentlich erhöhen. Dazu waren geeignete Materialien aufzufinden, die eine hohe mechanische Festigkeit in Verbindung mit sehr großer chemischer Beständigkeit gegen Fluide in Kühlkreisläufen aufweisen.

15

Die geforderten Materialien sollen außerdem für Serienfertigungsverfahren geeignet sein, um die Herstellkosten derartiger Kühlsysteme niedrig zu halten.

20 Die Aufgabe wird durch den erfindungsgemäßen Kühlkreislauf sowie durch die Verwendung ausgewählter Materialien gelöst.

Die Erfindung betrifft eine Kühlvorrichtung für elektrische Einrichtungen, durch die ein elektrisch isolierendes Kühlfluid im Kreislauf geführt wird, umfassend Zu- und Ableitungen für ein in Kontakt mit den elektrische Spannung führenden Teilen stehendes Kühlfluid. Die Kühlvorrichtung ist dadurch gekennzeichnet, dass zumindest die mit dem Kühlmedium in Kontakt stehenden Teile der Kühlvorrichtung aus Polyarylensulfid und/oder aus flüssig-kristallinem Polyester bestehen oder eine Beschichtung aus diesen Polymeren aufweisen.

30 Unter elektrischen Einrichtungen sind im Rahmen dieser Beschreibung alle Einrichtungen mit Teilen zu verstehen, die unter einer elektrische Spannung stehen und die mittels einem elektrisch isolierenden Fluid gekühlt werden.

Beispiele für elektrische Einrichtungen, bei denen Verlustwärme abzuführen ist, sind Transformatoren, Wechselrichter, Elektromotoren oder galvanische Elemente zur Erzeugung von elektrischer Energie, insbesondere Brennstoffzellen.

- 5 Die Kühlvorrichtungen bestehen im allgemeinen aus einem Rohrsystem zum Zu- und Ableiten des Fluids zumindest in den Bereich der elektrische Spannung führenden Teile zu deren Kühlung, einem oder mehreren Wärmetauschern zum Austausch der erzeugten Wärme und Abkühlung des Fluids und/oder
- 10 Vorratsbehälter(n) für das Fluid sowie Pumpen, mit denen eine Umwälzung des Fluids in der Kühlvorrichtung bewirkt wird und gegebenenfalls von Sensoren, die Teile eines Regelkreises darstellen können, mit dem z.B. die Umlaufgeschwindigkeit des Fluids im Kreislauf beeinflusst wird.

Als Fluid kann jedes elektrisch nicht oder wenig leitende flüssige, gasförmige oder überkritische Medium eingesetzt werden, das in der Lage ist, die erzeugte Wärme bestimmungsgemäß abzuführen. Typische Leitfähigkeiten des Fluids bewegen sich im Bereich unterhalb von 10 $\mu\text{S}/\text{cm}$, vorzugsweise unterhalb von 5 $\mu\text{S}/\text{cm}$. Überkritische Medien oder insbesondere Flüssigkeiten sind wegen ihrer guten Wärmekapazität bevorzugt. Ganz besonders bevorzugt ist ein Gemisch aus Wasser und Alkohol, insbesondere einem Glykol, wie Ethylenglykol und/oder Polyethylenglykol, das eine elektrische Leitfähigkeit von <10 $\mu\text{S}/\text{cm}$, insbesondere von <5 $\mu\text{S}/\text{cm}$, aufweist.

Die mit den elektrische Spannung führenden Teilen in Kontakt stehenden und/oder diesen nahe kommenden Teile der Kühlvorrichtung bestehen zu-mindest im Bereich dieser spannungsführenden Teile der elektrischen Einrichtung aus Polyarylensulfid und/oder aus flüssigkristallinem Polyester oder enthalten eine Beschichtung aus diesen Polymeren.

30 Alle Teile der Kühlvorrichtung, die mit den elektrische Spannung führenden Teilen in Kontakt kommen oder diesen nahe kommen, können vollständig aus diesen Polymeren bestehen. Anstelle einer vollständigen Ausbildung der Teile aus diesen Polymeren bestehen diese vorzugsweise aus der Kombination eines Metalls,

beispielsweise aus Kupfer, aus rostfreiem Stahl oder aus Aluminium, und einer Beschichtung aus diesen Polymeren.

Derartige Teile der Kühlvorrichtung umfassen also mindestens eine Schicht aus einer Formmasse, die aus einem flüssigkristallinen Polyester und/oder einem Polyarylensulfid besteht. Diese Schicht kann neben dem Polymeren noch weitere Zusätze enthalten, wie beispielsweise faserförmige Verstärkungsstoffe, wie Glasfasern, Carbonfasern, Borfasern oder Whisker; oder Füllstoffe, wie Talk oder Kalziumcarbonat, oder andere an sich übliche Additive und Hilfsstoffe zur 10 Verarbeitung der Polymeren, solange diese Zusätze die Langzeitstabilität des Fluids nicht nachteilig beeinflussen.

Die erfindungsgemäß eingesetzten Formmassen können neben Polyarylensulfid oder flüssigkristallinem Polyester gegebenenfalls auch mit weiteren Kunststoffen 15 und/oder Metallen kombiniert werden.

Die erfindungsgemäß eingesetzten Polyarylensulfide sind an sich bekannt. Dabei handelt es sich üblicherweise um lineare Polymere enthaltend die wiederkehrende Struktureinheit der Formel I

20

-Ar- S- (I),

worin Ar ein zweiwertiger aromatischer Rest, vorzugsweise meta- und/oder para-Phenylen ist.

25

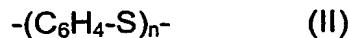
Polyarylensulfide können über dihalogenierte aromatische Verbindungen hergestellt werden. Bevorzugte dihalogenierte aromatische Verbindungen sind p-Dichlorbenzol, m-Dichlorbenzol, 2,5-Dichlortoluol, p-Dibrombenzol, 1,4-Dichlornaphthalin, 1-Methoxy-2,5-dichlorbenzol, 4,4'-Dichlorbiphenyl, 3,5-Dichlorbenzoësäure, 4,4'-Dichlor-di-phenylether, 4,4'-Dichlor-diphenylsulfon, 4,4'-Dichlor-diphenylsulfoxid und 30 4,4'-Dichlor-di-phenylketon. Andere halogenierte Verbindungen, wie beispielsweise

trihalogenierte Aromaten können in geringen Mengen eingesetzt werden, um die Eigenschaften des Polymeren gezielt zu beeinflussen.

Erfindungsgemäß wird als Polyarylensulfid bevorzugt Polyphenylensulfid eingesetzt.

5

Polyphenylensulfid (PPS) ist ein teilweise kristallines Polymer mit der allgemeinen Formel II



10

wobei $n > 1$ ist und das Polymer mindestens eine Molmasse (M_w) von größer 200 g/mol besitzt.

15

Es können auch vernetzte Polyarylensulfide eingesetzt werden; bevorzugt werden lineare Typen, insbesondere solche, die sich zu mehr als 90 Mol%, bezogen auf die Aryleneinheiten, von p-Phenylen ableiten.

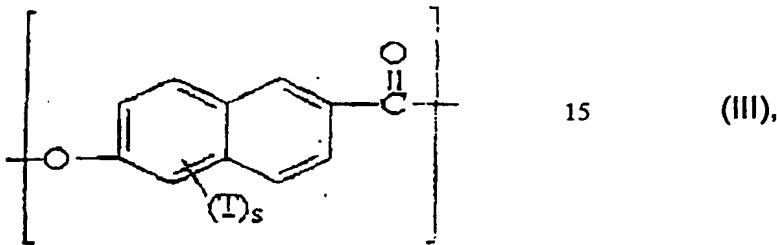
20

Besonders bevorzugt werden lineare Polyphenylensulfide eingesetzt, die Schmelzviskositäten (gemessen bei 316°C und einem Schergefälle von 400/Sek. gemäß ASTM D3835) von 30 – 1500 Pa*sec aufweisen.

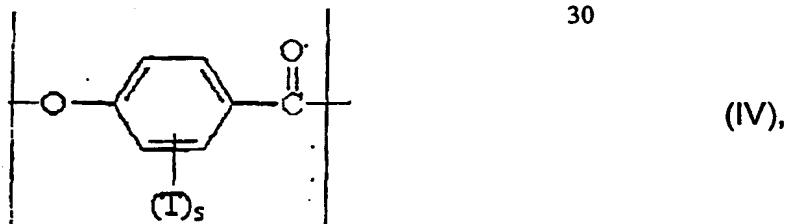
25

Erfindungsgemäß können ferner die an sich bekannten flüssigkristallinen Kunststoffe eingesetzt werden. Bezuglich des Typs der verwendeten Materialien bestehen keine Einschränkungen, vorteilhaft sind jedoch Materialien, die sich thermoplastisch verarbeiten lassen. Besonders geeignete Materialien sind zum Beispiel in Saechtling, Kunststoff-Taschenbuch, Hanser-Verlag, 27. Ausgabe, auf den Seiten 51 7 bis 521 beschrieben, worauf Bezug genommen wird. Vorteilhaft einsetzbare Materialien sind Polyterephthalate, Polyisophthalate, PET-LCP, PBT-LCP, Poly(m-phenylenisophthalimid), PMPI-LCP, Poly(p-phenylenphthalimid), PPTA-LCP, Polyarylate, PAR LCP, Polyestercarbonate, PEC-LCP, Polyazomethine, Polythioester, Polyester-amide, Polyesterimide sowie Polyarylenoxide.

Besonders vorteilhaft sind auf p-Hydroxybenzoësäure basierende flüssig-kristalline Kunststoffe wie Copolyester und Copolyesteramide. Ganz besonders vorteilhaft als flüssigkristalline Kunststoffe einzusetzen sind im allgemeinen vollaromatische Polyester, die anisotrope Schmelzen bilden und mittlere Molekulargewichte (M_w=Gewichtsmittel) von 2000 bis 200.000, bevorzugt von 3.500 bis 50.000 und insbesondere von 4000 bis 30.000 g/mol aufweisen. Eine geeignete Klasse flüssigkristalliner Polymerer ist beschrieben in US-A-4 161 470, worauf Bezug genommen wird. Es handelt sich dabei um Naphthoyl-Copolyester mit wiederkehrenden Struktureinheiten der Formel III und IV



25



40

worin T ausgewählt ist aus einem Alkyrest, einem Alkoxyrest, jeweils mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder einem Halogen, vorzugsweise Chlor, Brom oder Fluor, s bedeutet Null oder eine ganze Zahl 1, 2, 3 oder 4, wobei im Falle mehrerer Reste T diese unabhängig voneinander gleich oder verschieden sind. Die Naphthoyl-
 45 Copolyester enthalten 10 bis 90 Mol %, vorzugsweise 25 bis 45 Mol % Struktureinheiten der Formel I und 90 bis 10 Mol %, vorzugsweise 85 bis 55 Mol %

Struktureinheiten der Formel II, wobei sich die Anteile der Struktureinheiten der Formeln I und II auf 100 Mol % ergänzen.

Weitere für den erfindungsgemäßen Zweck geeignete flüssigkristalline Polyester
5 sind in EP-A-0 278 066 und US-A-3 637 595 beschrieben, worauf Bezug genommen
wird.

Überraschend wurde gefunden, dass Polyarylensulfide („PPS“), wie Fortron^R, und
auch flüssigkristalline Polyester selbst bei erhöhten Temperaturen die Leitfähigkeit
10 von isolierenden Kühlfluiden, wie von Glykol-Wassergemischen, nicht wesentlich
erhöht.

Die vorliegende Erfindung betrifft auch die Verwendung von Polyarylensulfid
und/oder flüssig-kristallinem Polyester in Kühlkreisläufen, die mit
15 spannungsführenden Teilen von elektrischen Einrichtungen in Kontakt stehen.
Besonders geeignet sind die erfindungsgemäß einsetzbaren Materialien zur
Herstellung von Teilen für Wärmetauscher, Kühler, Pumpen, Sensoren und Ventilen
für derartige Kühlkreisläufe.

20 Die nachfolgenden Beispiele erläutern die Erfindung ohne diese zu begrenzen.

Beispiel 1

25 50 Gramm unverstärktes Poly-(p-phenylensulfid) (Fortron^R) Granulat wurden in 500 ml einer Kühlflüssigkeit (VE-Wasser : Glykol 1 : 1; Vol. Teile) bei 80°C gelagert. Die Leitfähigkeit der Lösung wurde in regelmäßigen Abständen mit Hilfe eines handelsüblichen Konduktometers (Hersteller Fa. Knick) bestimmt.

30 Vergleichend wurde eine Blindprobe ohne Granulateinwaage vermessen.
Selbst nach langer Zeit war die Leitfähigkeit des Wärmeträgerfluids noch unter 5 µS/cm.

Die Leitfähigkeit des Wärmeträgerfluids ist in der nachfolgenden Tabelle 1 aufgeführt
(RT bedeutet Raumtemperatur = 25°C)

Temperatur (°C)	Lagerzeit (h)	Leitfähigkeit (μ S/cm)
RT	0	0,16
80	4	0,32
80	24	0,65
80	48	0,96
80	72	1,02
80	96	1,03
80	120	1,03
80	144	1,11
80	168	1,14

5 Vergleichsbeispiel 1

50 Gramm Aluminium-Chips der Größe 5mmx5mmx1mm wurden wie in Beispiel 1
beschrieben in einem Glykol/Wasser-Gemisch gelagert und die Leitfähigkeit der
Flüssigkeit bestimmt. Wie in Tabelle 2 zu sehen ist, steigt die Leitfähigkeit schon
10 nach kurzer Zeit stark an.

Temperatur (°C)	Lagerzeit (h)	Leitfähigkeit (µS/cm)
RT	0	8,63
80	4	81,49
80	24	>200
80	48	>200
80	72	>200
80	96	>200
80	120	>200
80	144	>200
80	168	>200

Beispiel 2

5 Wie in Beispiel 1 beschrieben wurden 50 g Fortron^R verstärkt mit 40% Glasfaser gelagert und die Leitfähigkeit des Wärmeträgerfluids bestimmt. Die Ergebnisse sind in der nachfolgenden Tabelle 3 dargestellt.

Temperatur (°C)	Lagerzeit (h)	Leitfähigkeit (µS/cm)
RT	0	0,08
80	6	0,36
80	24	0,76
80	48	1,15
80	72	1,53
80	96	1,8
80	120	1,92
80	144	1,98
80	168	2,01

Vergleichsbeispiel 2

50 Gramm Kupfer-Chips der Größe 5mmx5mmx1mm wurden wie in Beispiel 1 beschrieben in einem Glykol/Wasser-Gemisch gelagert und die Leitfähigkeit der Flüssigkeit bestimmt. Wie in Tabelle 4 zu sehen ist, steigt die Leitfähigkeit schon nach kurzer Zeit stark an.

5

Temperatur (°C)	Lagerzeit (h)	Leitfähigkeit (µS/cm)
RT	0	0,04
80	4	1,28
80	24	3,14
80	48	5,88
80	72	8,03
80	96	10,49
80	120	12,74
80	144	14,87
80	168	17,84

Beispiel 3

Wie in Beispiel 1 beschrieben wurden 50 g eines flüssig-kristallinen Polyesters (Vectra^R) unverstärkt gelagert und die Leitfähigkeit des Wärmeträgerfluids bestimmt.

10 Die Ergebnisse sind in der nachfolgenden Tabelle 5 dargestellt.

Temperatur (°C)	Lagerzeit (h)	Leitfähigkeit (µS/cm)
RT	0	0,09
80	4	0,16
80	24	0,19
80	48	0,29
80	72	0,46
80	96	0,69
80	120	0,77
80	144	0,93
80	168	0,99

Vergleichsbeispiel 3

50 Gramm Glasfaser-verstärktes PPA (PolyPhthalAmid, Amodel von BP-Amoco)

5 wurden wie in Beispiel 1 beschrieben in einem Glykol/Wasser-Gemisch gelagert und die Leitfähigkeit der Flüssigkeit bestimmt. Wie in Tabelle 6 zu sehen ist, steigt die Leitfähigkeit schon nach kurzer Zeit stark an.

Temperatur (°C)	Lagerzeit (h)	Leitfähigkeit (µS/cm)
RT	0	0,34
80	4	23,39
80	24	54,87
80	48	72,19
80	72	85,29
80	96	95,91
80	120	>200
80	144	>200
80	168	>200

Vergleichsbeispiel 4

50 Gramm unverstärktes Polyamid (Nylon PA6.6) wurden wie in Beispiel 1

10 beschrieben in einem Glykol/Wasser-Gemisch gelagert und die Leitfähigkeit der

Flüssigkeit bestimmt. Wie in Tabelle 7 zu sehen ist, steigt die Leitfähigkeit schon nach kurzer Zeit stark an.

Temperatur (°C)	Lagerzeit (h)	Leitfähigkeit (μ S/cm)
RT	0	0,53
80	4	19,49
80	24	45,47
80	48	55,79
80	72	60,49
80	96	62,71
80	120	64,06
80	144	64,90
80	168	65,44

5 Vergleichsbeispiel 5

50 Gramm unverstärktes Hochtemperatur-Polyamid (High Temperature Nylon; HTN von DuPont) wurden wie in Beispiel 1 beschrieben in einem Glykol/Wasser-Gemisch gelagert und die Leitfähigkeit der Flüssigkeit bestimmt. Wie in Tabelle 8 zu sehen ist, steigt die Leitfähigkeit schon nach kurzer Zeit stark an.

Temperatur (°C)	Lagerzeit (h)	Leitfähigkeit (µS/cm)
RT	0	1,38
80	4	10,10
80	24	20,27
80	48	25,79
80	72	29,79
80	96	32,81
80	120	34,86
80	144	36,20
80	168	37,94

Patentansprüche

1. Kühlvorrichtung für elektrische Einrichtungen, durch die ein elektrisch isolierendes Kühlfluid im Kreislauf geführt wird, umfassend Zu- und Ableitungen für ein in Kontakt mit den elektrische Spannung führenden Teilen stehendes Kühlfluid, dadurch gekennzeichnet, dass zumindest die mit dem Kühlmedium in Kontakt stehenden Teile der Kühlvorrichtung aus Polyarylensulfid und/oder aus flüssigkristallinem Polyester bestehen oder eine Beschichtung aus diesen Polymeren aufweisen.
5
2. Kühlvorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei der elektrischen Einrichtung um eine Brennstoffzelle, insbesondere um eine Brennstoffzelle mit Polymer-Elektrolytmembranen handelt.
10
3. Kühlvorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das elektrisch isolierende Kühlfluid eine Mischung aus Wasser und einem Alkohol, vorzugsweise einem Glykol, mit einer elektrischen Leitfähigkeit von weniger als 5 μ S/cm ist.
15
4. Kühlvorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die mit dem elektrisch isolierenden Kühlfluid in Kontakt stehenden Teile der Kühlvorrichtung zumindest im Bereich der spannungsführenden Teile der elektrischen Einrichtungen aus Polyarylensulfid oder aus flüssigkristallinem Polyester bestehen oder eine Beschichtung aus diesen Polymeren aufweisen.
20
5. Kühlvorrichtung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass das Polyarylensulfid Poly-(p-phenylensulfid) ist.
25
6. Verwendung von Polyarylensulfid und/oder flüssig-kristallinem Polyester in Kühlkreisläufen, die mit spannungsführenden Teilen von elektrischen Einrichtungen in Kontakt stehen.
30

7. Verwendung nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei der elektrischen Einrichtung um eine Brennstoffzelle handelt.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP 02/12155

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 H01M8/02 H01M10/50 C09K5/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 H01M C09K

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 3 880 670 A (SHINN BYRON H) 29 April 1975 (1975-04-29) the whole document	1,2,6,7
X	EP 0 683 536 A (CLC SRL ;INT FUEL CELLS CORP (US)) 22 November 1995 (1995-11-22) column 5, line 12 - line 21 claim 1; figures	1,2,6,7
X	EP 1 020 941 A (NICHIAS CORP) 19 July 2000 (2000-07-19) claims 1,10,11; figure 5	1,2,6,7
A	US 3 945 844 A (NICKOLS JR RICHARD C) 23 March 1976 (1976-03-23) the whole document	1-7
	---	-/-

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the International filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the International filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *&* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the International search

11 February 2003

Date of mailing of the International search report

19/02/2003

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Puetz, C

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 02/12155

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 6 180 275 B1 (ZABRISKIE JR JOHN E ET AL) 30 January 2001 (2001-01-30) the whole document ---	1,2
A	WO 00 17951 A (BALLARD POWER SYSTEMS ;WATSON MARK K (CA); ST PIERRE JEAN (CA); CA) 30 March 2000 (2000-03-30) the whole document ---	1,3

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 02/12155

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)		Publication date
US 3880670	A	29-04-1975		CA 994853 A1 DE 2430614 A1 FR 2236282 A1 JP 50048435 A		10-08-1976 23-01-1975 31-01-1975 30-04-1975
EP 0683536	A	22-11-1995		AT 189081 T DE 69514567 D1 DE 69514567 T2 EP 0683536 A1 ES 2145208 T3 JP 8045515 A US 6050331 A		15-02-2000 24-02-2000 31-08-2000 22-11-1995 01-07-2000 16-02-1996 18-04-2000
EP 1020941	A	19-07-2000		JP 2000208154 A EP 1020941 A2 US 6395416 B1		28-07-2000 19-07-2000 28-05-2002
US 3945844	A	23-03-1976		AT 315934 B AU 470599 B2 AU 4464772 A BE 787317 A1 CA 986985 A1 CH 581392 A5 DE 2238643 A1 DK 133260 B ES 405574 A1 FR 2149413 A1 GB 1404827 A IL 39923 A IT 963935 B JP 48028936 A JP 56042105 B NL 7211193 A SE 387776 B ZA 7205706 A		25-06-1974 25-03-1976 24-01-1974 01-12-1972 06-04-1976 29-10-1976 22-02-1973 12-04-1976 01-08-1975 30-03-1973 03-09-1975 28-07-1975 21-01-1974 17-04-1973 02-10-1981 20-02-1973 13-09-1976 30-05-1973
US 6180275	B1	30-01-2001		AU 1823500 A AU 2027700 A CN 1326598 T EP 1135823 A1 JP 2002530819 T JP 2002530820 T WO 0030202 A1 WO 0030203 A1		05-06-2000 05-06-2000 12-12-2001 26-09-2001 17-09-2002 17-09-2002 25-05-2000 25-05-2000
WO 0017951	A	30-03-2000		AU 5723099 A CA 2344856 A1 WO 0017951 A1 EP 1116296 A1		10-04-2000 30-03-2000 30-03-2000 18-07-2001

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP 02/12155

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 H01M8/02 H01M10/50 C09K5/10

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 H01M C09K

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 3 880 670 A (SHINN BYRON H) 29. April 1975 (1975-04-29) das ganze Dokument	1,2,6,7
X	EP 0 683 536 A (CLC SRL ;INT FUEL CELLS CORP (US)) 22. November 1995 (1995-11-22) Spalte 5, Zeile 12 - Zeile 21 Anspruch 1; Abbildungen	1,2,6,7
X	EP 1 020 941 A (NICHIAS CORP) 19. Juli 2000 (2000-07-19) Ansprüche 1,10,11; Abbildung 5	1,2,6,7
A	US 3 945 844 A (NICKOLS JR RICHARD C) 23. März 1976 (1976-03-23) das ganze Dokument	1-7
		-/-

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

- Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
- "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
- "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung: die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung: die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- "g" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des Internationalen Recherchenberichts
11. Februar 2003	19/02/2003
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter Puetz, C

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 02/12155

C (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	US 6 180 275 B1 (ZABRISKIE JR JOHN E ET AL) 30. Januar 2001 (2001-01-30) das ganze Dokument	1,2
A	WO 00 17951 A (BALLARD POWER SYSTEMS ;WATSON MARK K (CA); ST PIERRE JEAN (CA); CA) 30. März 2000 (2000-03-30) das ganze Dokument	1,3

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 02/12155

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
US 3880670	A	29-04-1975	CA DE FR JP	994853 A1 2430614 A1 2236282 A1 50048435 A		10-08-1976 23-01-1975 31-01-1975 30-04-1975
EP 0683536	A	22-11-1995	AT DE DE EP ES JP US	189081 T 69514567 D1 69514567 T2 0683536 A1 2145208 T3 8045515 A 6050331 A		15-02-2000 24-02-2000 31-08-2000 22-11-1995 01-07-2000 16-02-1996 18-04-2000
EP 1020941	A	19-07-2000	JP EP US	2000208154 A 1020941 A2 6395416 B1		28-07-2000 19-07-2000 28-05-2002
US 3945844	A	23-03-1976	AT AU AU BE CA CH DE DK ES FR GB IL IT JP JP NL SE ZA	315934 B 470599 B2 4464772 A 787317 A1 986985 A1 581392 A5 2238643 A1 133260 B 405574 A1 2149413 A1 1404827 A 39923 A 963935 B 48028936 A 56042105 B 7211193 A 387776 B 7205706 A		25-06-1974 25-03-1976 24-01-1974 01-12-1972 06-04-1976 29-10-1976 22-02-1973 12-04-1976 01-08-1975 30-03-1973 03-09-1975 28-07-1975 21-01-1974 17-04-1973 02-10-1981 20-02-1973 13-09-1976 30-05-1973
US 6180275	B1	30-01-2001	AU AU CN EP JP JP WO WO	1823500 A 2027700 A 1326598 T 1135823 A1 2002530819 T 2002530820 T 0030202 A1 0030203 A1		05-06-2000 05-06-2000 12-12-2001 26-09-2001 17-09-2002 17-09-2002 25-05-2000 25-05-2000
WO 0017951	A	30-03-2000	AU CA WO EP	5723099 A 2344856 A1 0017951 A1 1116296 A1		10-04-2000 30-03-2000 30-03-2000 18-07-2001

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.